

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-251675

(43)Date of publication of application : 09.09.2003

(51)Int.Cl.

B29C 47/04
B29C 55/02
B32B 27/08
// B29K 67:00
B29L 7:00

(21)Application number : 2002-053125

(71)Applicant : TEIJIN DUPONT FILMS JAPAN
LTD

(22)Date of filing : 28.02.2002

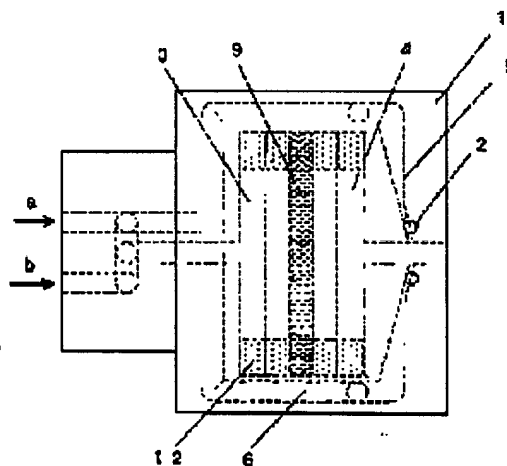
(72)Inventor : NAKANISHI YASUSUKE

(54) METHOD AND APPARATUS FOR MANUFACTURING MULTILAYERED FILM

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a method for manufacturing a multilayered film by which thickness of the multilayered film can be efficiently controlled to a thickness with good handling properties while optical characteristics are kept and the film can be efficiently produced, and an apparatus for manufacturing it.

SOLUTION: The method for manufacturing the multilayered film in which at least eleven layers of layers A comprising a resin A and layers B comprising a resin B are laminated and at least one of outermost layers is a thick film layer and layers except the thick film layer are thin film layers, is characterized in that the resin A and the resin B are separately melted in extruders and the melted resins are respectively introduced into flow paths in multilayered feed blocks to form multilayered melted thin film layers, and at least one melted resin between the melted resin A and the melted resin B is made to branch from the melted resins introduced into the multilayered fed blocks and is joined to the outside of the multilayered melted thin film layers through a flow path for the outermost layer and is extruded into a sheet in the multilayered direction of the layers A and the layers B in the thickness direction from a successive die, and then, the film is cooled and solidified on a casting drum to



form an undrawn film and this undrawn film is drawn in at least one direction of the longitudinal and transverse directions.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 05.08.2004

[Date of sending the examiner's decision of rejection] 02.05.2006

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2003-251675

(P2003-251675A)

(43) 公開日 平成15年9月9日(2003.9.9)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマート* (参考)
B 2 9 C 47/04		B 2 9 C 47/04	4 F 1 0 0
55/02		55/02	4 F 2 0 7
B 3 2 B 27/08		B 3 2 B 27/08	4 F 2 1 0
// B 2 9 K 67:00		B 2 9 K 67:00	
B 2 9 L 7:00		B 2 9 L 7:00	

審査請求 未請求 請求項の数17 O L (全 11 頁)

(21) 出願番号 特願2002-53125(P2002-53125)

(22) 出願日 平成14年2月28日(2002.2.28)

(71) 出願人 301020226

帝人デュボンフィルム株式会社

東京都千代田区内幸町二丁目1番1号

(72) 発明者 中西 庸介

神奈川県相模原市小山3丁目37番19号 帝

人デュボンフィルム株式会社相模原研究セ

ンター内

(74) 代理人 100099678

弁理士 三原 秀子

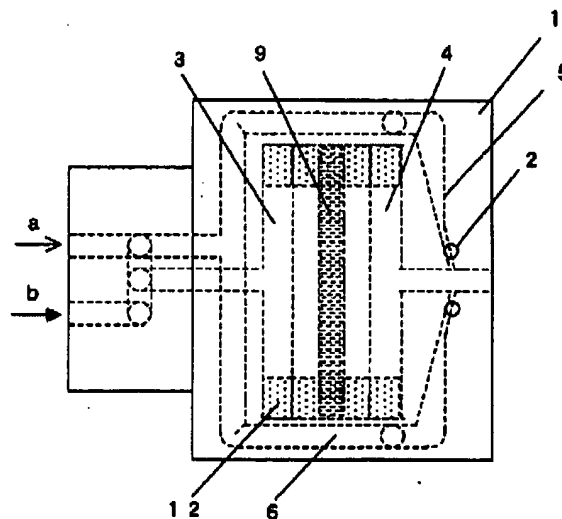
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 多層フィルムの製造方法及び装置

(57) 【要約】

【課題】 光学的特性を維持しつつ多層フィルムの厚みをハンドリング性の良い厚みに効率良く制御でき、かつ効率良く生産できる多層フィルムの製造方法および装置を提供する。

【解決手段】 樹脂AからなるA層と樹脂BからなるB層とが11層以上積層され、最外層の少なくとも一方の層が厚膜層であり、厚膜層以外の層が薄膜層である多層フィルムの製造方法であって、樹脂Aと樹脂Bを別個に押出機で熔融し、それぞれの熔融樹脂を多層フィードブロック内の流路に導いて多層熔融薄膜層とし、別途熔融樹脂Aと熔融樹脂Bの少なくとも一方の熔融樹脂を多層フィードブロックへ導く熔融樹脂と分岐し最外層用流路を介して多層熔融薄膜層の外側に合流させ、これに続くダイよりA層とB層が厚み方向に多層となる向きでシート状に押出し、次いでキャストドラムで冷却固化して未延伸フィルムとし、この未延伸フィルムを縦方向及び横方向の少なくとも一方向に延伸することを特徴とする多層フィルムの製造方法。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 樹脂AからなるA層と樹脂BからなるB層とが11層以上積層され、最外層の少なくとも一方の層が厚膜層であり、厚膜層以外の層が薄膜層である多層フィルムの製造方法であって、樹脂Aと樹脂Bを別個に押出機で溶融し、それぞれの溶融樹脂を多層フィードブロック内の流路に導いて多層溶融薄膜層とし、別途溶融樹脂Aと溶融樹脂Bの少なくとも一方の溶融樹脂を多層フィードブロックへ導く溶融樹脂と分岐し最外層用流路を介して多層溶融薄膜層の外側に合流させ、これに続くダイよりA層とB層が厚み方向に多層となる向きでシート状に押出し、次いでキャストドラムで冷却固化して未延伸フィルムとし、この未延伸フィルムを縦方向及び横方向の少なくとも一方向に延伸することを特徴とする多層フィルムの製造方法。

【請求項2】 最外層の両層が樹脂Aまたは樹脂Bからなる厚膜層である請求項1に記載の多層フィルムの製造方法。

【請求項3】 最外層の一方の層が樹脂Aからなる厚膜層であり、他方の層が樹脂Bからなる厚膜層である請求項1に記載の多層フィルムの製造方法。

【請求項4】 最外層用流路の断面が円形から矩形に変化する構造であって、矩形部に流路を部分的に塞ぐディストリビューションピンが挿入されており、該ピンの流路開度で溶融樹脂の流量を調整する請求項1に記載の多層フィルムの製造方法。

【請求項5】 未延伸フィルムの厚膜層の厚みが1～100μmの範囲であり、薄膜層の厚みが0.01～0.5μmの範囲である請求項1ないし3の何れか1項に記載の多層フィルムの製造方法。

【請求項6】 多層フィードブロック内に導かれた溶融樹脂Aと溶融樹脂Bとをそれぞれを細孔により多層に分岐した後、分岐した溶融樹脂Aと溶融樹脂Bが交互に流入するよう平行板で仕切られた扁平な流路に導き、更に多層フィードブロック内の合流部に導き樹脂Aと樹脂Bが交互に積層された薄膜層を形成させる請求項1～3の何れか1項に記載の多層フィルムの製造方法。

【請求項7】 薄膜層の層数を制御するために、細孔部および/または合流部を塞ぐインナーディッケルを用いる請求項1ないし3の何れか1項に記載の多層フィルムの製造方法。

【請求項8】 多層フィードブロックに温度分布を持たせることにより薄膜層の厚みを徐々に変化させる請求項1ないし7の何れか1項に記載の多層フィルムの製造方法。

【請求項9】 未延伸フィルムを構成するA層の面内方向の屈折率とB層の面内方向の屈折率の差が0.005以上である請求項1に記載の多層フィルムの製造方法。

【請求項10】 少なくとも1方向に延伸された延伸フィルムを構成するA層の面内方向の屈折率とB層の面内

方向の屈折率の差が0.005以上である請求項1に記載の多層フィルムの製造方法。

【請求項11】 樹脂Aがポリエチレン-2, 6-ナフタレートを主成分とする請求項1ないし10の何れか1項に記載の多層フィルムの製造方法。

【請求項12】 樹脂Bがポリエチレン-2, 6-ナフタレートとポリエチレンテレフタレートの混合物を主成分とする請求項1ないし10の何れか1項に記載の多層フィルムの製造方法。

10 【請求項13】 樹脂Bが融点210～245℃のポリエチレンテレフタレート共重合体を主成分とする請求項1ないし10の何れか1項に記載の多層フィルムの製造方法。

【請求項14】 ポリエチレンテレフタレート共重合体の共重合成分がエチレンイソフタレートである請求項13に記載の多層フィルムの製造方法。

20 【請求項15】 樹脂AからなるA層と樹脂BからなるB層とが11層以上積層され、最外層の少なくとも一方の層が厚膜層であり、厚膜層以外の層が薄膜層である多層フィルムの製造装置であって、樹脂Aと樹脂Bを別個に押出機で溶融し、それぞれの溶融樹脂を多層フィードブロック内の流路に導いて多層溶融薄膜層とし、別途溶融樹脂Aと溶融樹脂Bの少なくとも一方の溶融樹脂を多層フィードブロックへ導く溶融樹脂と分岐し最外層用流路を介して多層溶融薄膜層の外側に合流させることを特徴とする請求項1に記載の多層フィルムの製造方法に用いる多層フィードブロック。

30 【請求項16】 最外層用流路の断面が円形から矩形に変化する構造であって、矩形部に流路を部分的に塞ぐディストリビューションピンが挿入されており、該ピンの流路開度で樹脂の流量を調整する請求項15に記載の多層フィードブロック。

【請求項17】 薄膜層の厚みを徐々に変化させるために多層フィードブロックに温度分布を持たせる手段を設けた請求項15または16に記載の多層フィードブロック。

【発明の詳細な説明】

【0001】

40 【発明の属する技術分野】本発明は多層フィルムの製造方法及び装置に関する。更に詳しくは、11層以上積層された多層フィルムの外層に厚膜層を設けた多層フィルムの製造方法及び装置に関し、任意の波長帯の光を選択的に反射または透過させることができ、かつ所望の光学特性に左右されることなくハンドリング性の良い厚みの多層フィルムを効率良く生産できる多層フィルムの製造方法及び装置に関する。

【0002】

50 【従来の技術】多層フィルムは、例えば屈折率の高い層と低い層を交互に多数積層すると、これら層間の構造的な光干渉によって特定波長の光を選択的に反射または透

過する光学干渉フィルムとなる。このような積層フィルムは選択的に反射または透過する光の波長領域を可視光領域とすることによって、反射型の偏光板や発色フィルム、金属光沢フィルム、反射ミラーフィルムへの用途が広がりつつある。また紫外線を選択的にカットすれば、防虫用の農業用フィルムとして用いることができる。また、近赤外を選択的にカットすれば日射カット用の窓張り用フィルムや、プラズマディスプレイ等の映像表示パネル面に周辺機器への誤作動を防止するための近赤外カットフィルムとして用いることができる。さらに、ショ

ウウィンドウに映像を投影するために、RGBの各色相を選択的に適度に透過させる多層フィルムを張り合わせたホログラム用途としても多層フィルムは有望である。
【0003】このような多層フィルムは、特開2000-329935号公報などに提案されている。しかし、実質的に各層の厚みが均一な多層フィルムでは、反射または透過させたい波長領域に応じて多層フィルムの総厚みが決まってしまう問題があった。例えば近赤外線や紫外線を実質的にカットするためには200層程度の積層で反射強度は十分であるが、多層フィルムの総厚みが5

〜30 μm 程度と薄手になるためハンドリング性が悪く、窓や電球、ディスプレイに貼付する時に空気が混入してしまう問題があった。総厚みを厚くするために層数を単に増やす方法も考えられるが、多層フィードブロックが層数アップに応じて大型化してしまい、その作成に技術的困難や多大な費用が伴う問題がある。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明の課題は、上述の問題を解消し、光学的特性を維持しつつ多層フィルムの厚みをハンドリング性の良い厚みに効率良く制御でき、かつ効率良く生産できる多層フィルムの製造方法および装置を提供することにある。

【0005】

【課題を解決するための手段】本発明の課題は、本発明によれば、(1)樹脂AからなるA層と樹脂BからなるB層とが11層以上積層され、最外層の少なくとも一方の層が厚膜層であり、厚膜層以外の層が薄膜層である多層フィルムの製造方法であって、樹脂Aと樹脂Bを別個に押出機で溶融し、それぞれの溶融樹脂を多層フィードブロック内の流路に導いて多層溶融薄膜層とし、別途溶融樹脂Aと溶融樹脂Bの少なくとも一方の溶融樹脂を多層フィードブロックへ導く溶融樹脂と分岐し最外層用流路を介して多層溶融薄膜層の外側に合流させ、これに続くダイよりA層とB層が厚み方向に多層となる向きでシート状に押し出し、次いでキャストイングドラムで冷却固化して未延伸フィルムとし、この未延伸フィルムを縦方向及び横方向の少なくとも一方向に延伸することを特徴とする多層フィルムの製造方法により達成できる。

【0006】また、本発明の更に好ましい態様として、(2)最外層の両層が樹脂Aまたは樹脂Bからなる厚膜

層である(1)に記載の多層フィルムの製造方法、

(3)最外層の一方の層が樹脂Aからなる厚膜層であり、他方の層が樹脂Bからなる厚膜層である(1)に記載の多層フィルムの製造方法、(4)最外層用流路の断面が円形から矩形に変化する構造であって、矩形部に流路を部分的に塞ぐディストリビューションピンが挿入されており、該ピンの流路開度で溶融樹脂の流量を調整する(1)に記載の多層フィルムの製造方法、(5)未延伸フィルムの厚膜層の厚みが1〜100 μm の範囲であり、薄膜層の厚みが0.01〜0.5 μm の範囲である(1)〜(3)の何れかに記載の多層フィルムの製造方法、(6)多層フィードブロック内に導かれた溶融樹脂Aと溶融樹脂Bとをそれぞれを細孔により多層に分岐した後、分岐した溶融樹脂Aと溶融樹脂Bが交互に流入するよう平行板で仕切られた扁平な流路に導き、更に多層フィードブロック内の合流部に導き樹脂Aと樹脂Bが交互に積層された薄膜層を形成させる(1)〜(3)の何れかに記載の多層フィルムの製造方法、(7)薄膜層の層数を制御するために、細孔部および/または合流部を塞ぐインナーディッケルを用いる請求項1〜3の何れかに記載の多層フィルムの製造方法、(8)多層フィードブロックに温度分布を持たせることにより薄膜層の厚みを徐々に変化させる請求項1〜7の何れかに記載の多層フィルムの製造方法、(9)未延伸フィルムを構成するA層の面内方向の屈折率とB層の面内方向の屈折率の差が0.005以上である(1)に記載の多層フィルムの製造方法、(10)少なくとも1方向に延伸された延伸フィルムを構成するA層の面内方向の屈折率とB層の面内方向の屈折率の差が0.005以上である(19)に記載の多層フィルムの製造方法、(11)樹脂Aがポリエチレン-2,6-ナフタレートを主成分とする(1)〜(10)の何れかに記載の多層フィルムの製造方法、(12)樹脂Bがポリエチレン-2,6-ナフタレートとポリエチレンテレフタレートの混合物を主成分とする請求項1〜10の何れかに記載の多層フィルムの製造方法、(13)樹脂Bが融点210〜245 $^{\circ}\text{C}$ のポリエチレンテレフタレート共重合体を主成分とする請求項1〜10の何れかに記載の多層フィルムの製造方法、(14)ポリエチレンテレフタレート共重合体の共重合成分がエチレンイソフタレートである(13)に記載の多層フィルムの製造方法を挙げることができる。

【0007】また、本発明の課題は、(15)樹脂AからなるA層と樹脂BからなるB層とが11層以上積層され、最外層の少なくとも一方の層が厚膜層であり、厚膜層以外の層が薄膜層である多層フィルムの製造装置であって、樹脂Aと樹脂Bを別個に押出機で溶融し、それぞれの溶融樹脂を多層フィードブロック内の流路に導いて多層溶融薄膜層とし、別途溶融樹脂Aと溶融樹脂Bの少なくとも一方の溶融樹脂を多層フィードブロックへ導く溶融樹脂と分岐し最外層用流路を介して多層溶融薄膜層

の外側に合流させることを特徴とする(1)に記載の多層フィルムの製造方法に用いる多層フィードブロックにより達成できる。

【0008】また、本発明の更に好ましい態様として、(16)最外層用流路の断面が円形から矩形に変化する構造であって、矩形部に流路を部分的に塞ぐディストリビューションピンが挿入されており、該ピンの流路開度で樹脂の流量を調整する(15)に記載の多層フィードブロック、(17)薄膜層の厚みを徐々に変化させるために多層フィードブロックに温度分布を持たせる手段を設けた(15)または(16)に記載の多層フィードブロックを挙げることができる。

【0009】

【発明の実施の形態】以下、図面を引用して本発明を説明する。

【0010】図1は、本発明の一つの実施形態を例示した多層フィードブロックの平面図である。図2は本発明の一つの実施形態を例示した多層フィードブロックの側面図であり、図3は図2のC部のうちA層用溶融樹脂Aを細孔で分岐する部分の斜視図であり、図4はC部のうち、樹脂Bを分岐してA層とB層を交互に重ねる扁平な流路を示した斜視図である。図5は多層フィードブロック内の溶融樹脂をダイから押し出し、キャスティングドラムで冷却して未延伸フィルムとする際の各装置の配置を示す概要図である。

【0011】図1～4において、1は多層フィードブロック、2はディストリビューションピン、3はマニホールド、4は合流後マニホールド、5は矩形断面導管、6は最外層(表層)のA層樹脂導管、7は薄膜部のA層樹脂導管、8はB層樹脂導管、9は細孔部、10は平行板、11は平行板で仕切られた扁平な流路、12はインナーディッケル、aはA層を構成する溶融樹脂Aの流れ方向、bはB層を構成する溶融樹脂Bの流れ方向である。

【0012】また、図5において、21は多層フィードブロックへの溶融樹脂Aの導管、22は多層フィードブロックへの溶融樹脂Bの導管、23は押出ダイ、24はダイより押出されたシート、25はキャスティングドラム、26は未延伸フィルムである。

【0013】本発明において、A層とB層が交互に重ねられた薄膜層は次の様に積層できる。すなわち、導管21でフィードブロック1に導入されたA層用の溶融樹脂Aは導管7を経由し、図示省略したマニホールド内で一旦幅方向に広げられ、一列に並んだ細孔9を通して平行板10で仕切られた扁平な流路11へと至る。一方、B層用の溶融樹脂Bは導管22から導管8を経由し、マニホールド3で一旦幅方向に広げられ、平行板10で仕切られた扁平な流路11(平行板10の各部材間の間隙)ではすでに樹脂Aと樹脂Bとが交互に配置され、その後平行板

で仕切られた扁平な流路11出口の合流マニホールド4の空隙部で合流しA層とB層の各溶融樹脂が流動状態で交互に積層される。

【0014】本発明の特徴は、この薄膜部の積層だけではどうしてもフィルムの厚みが薄くなり扱いにくいフィルムとなるため、最外層(以下「表層」ということがある)に厚膜層を設けることである。すなわち、導管21より進入した溶融樹脂Aは、T字導管にて一旦、導管7(薄膜層へ向かう導管)と導管6(表層の厚膜層へ向かう導管)に分岐され、さらに表層へ向かう導管はT字導管にて両表層へ向かう導管6に分岐され、その後ディストリビューションピン2の近くで薄膜部の溶融樹脂と再合流させ図7(a)のように表層に厚膜層を設けることができる。

【0015】ディストリビューションピン2の形状は従来から知られ用いられている形状を用いることができ、たとえば矩形の導管部5を部分的に塞ぐため図8のように円形断面を切り欠いた形状を例示できる。また、このピンを回転させることで樹脂の通過断面積を変更でき、これにより薄膜部と厚膜部の流量を調整でき、また厚膜層同士の流量も調整できることから広い厚み帯の多層積層フィルムを製造できる。一方、後述の細孔9の幅を変更することで厚膜層を設けることもできるが、この場合要求される厚みに応じて細孔の幅が異なるフィードブロックを持たねばならず、経済的に不利である。

【0016】本発明において、図1と図2では、A層用の溶融樹脂Aを分岐したフィードブロックを例示したが、図6のように必要に応じてB層用の溶融樹脂Bも分岐して図7(b)に示した積層となるようにすることも可能である。両樹脂を表層に回す理由としては、通常、表層に回す樹脂Aは屈折率が高く、延伸温度が高い樹脂を選定するが、この樹脂は一般に高価であることが多く、このA層樹脂だけで厚膜層を形成するとフィルム単価が高くなり、比較的安価なB層樹脂で厚膜層を形成させる方が製造コストの面で有利な場合があることが挙げられる。

【0017】一方、c部の薄膜部の合流部詳細については、細孔9の幅は、狭すぎると幅寸法に対して各層流量が敏感に反応するため高精度の加工を要求され、逆に広すぎると細孔で圧が立たないため各層流量がばらつきやすいため、0.2～2mmが好ましく、0.5～1mmがより好ましい。細孔の長さは、ワイヤーによる放電加工の関係から長すぎると加工できないため、5～25mmが好ましく、7～12mmがより好ましい。また各細孔は実質上同寸法で製作しておくこと、例えばフィードブロックの幅方向に温度差がないよう(等温状態)に温度制御すれば、薄膜部の各層の厚みが均一な多層積層フィルムを製膜でき、逆に薄膜部各層の厚みに変化をつける時にはフィードブロックの幅方向に温度分布をつけることで対応することができる。もちろん、各細孔9の幅を変

化させることで薄膜部各層の厚みに変化をつけることも可能であり、幅寸法を変化させる範囲は上述の良好範囲内が好ましい。

【0018】平行板10の肉厚は、薄すぎるとメンテナンスで破損しやすく、運転中も樹脂の内圧で曲がってしまい、厚すぎると層数を増やした場合、フィードブロックの幅が広くなり大型化してしまうので、0.3~4mmが好ましく、0.5~2mmがより好ましい。平行板10の長さも、破損し難く、適度に圧損を稼ぐ観点から5~40mmが好ましく、10~20mmがより好ましい。平行板10の配置ピッチは9の幅寸法と合わせておくことが好ましく、段差無く組み込むことにより樹脂の滞留劣化がなく良好なフィルムを製膜できる。

【0019】以上で判るとおり、フィードブロック1を構成する各部品は、高精度の加工が必要であり、しかし強度的に弱い構造となっており、材質としては硬めのSUS630やSUS420(J2)が好適である。また各ブロックの樹脂の流動面は0.6S以上の仕上げをしておく、筋欠陥等がない多層積層フィルムを製膜できる。

【0020】本発明におけるA層とB層の積層状態は、A層とB層を総数で11層以上、好ましくは31層以上積層したものである。積層数が11層未満だと多重干渉による選択反射が小さく十分な反射率が得られない。尚、積層数の上限は生産性の観点から301層であることが好ましい。多層積層フィルムの層数に応じて個々に専用フィードブロックを用意しても良いが、本発明のマニホールドと細孔によって多層に分岐する装置であれば、必要層数に応じて細孔の樹脂入り口を塞ぐインナーディッケル12を挿入し層数をコントロールする方がコストの面で有利である。

【0021】また、薄膜部のA層およびB層はそれぞれ1層の厚みは0.01~0.5μmであることが層間の光干渉によって選択的に光を反射するのに必要である。さらに厚膜部の個々の厚みは1~100μmであることが好ましく、これより小さいとピン2での流量開度を極めて狭く調整する必要があり機械的な調整が難しく、また薄膜層へ回す樹脂流量との流量バランスが崩れやすくなる。逆にこれより大きい範囲は技術的に可能であるが、多層フィルムとして要求されていないのが現状である。

【0022】尚、図1~図4のフィードブロックの各図は、1つの実施形態を例示したものであり、細孔9と平行板10はそれぞれ垂直に合流しているが、樹脂の経路差による滞留時間を平均化するためある角度をもって斜めに合流させてもよく、また、樹脂Bは扁平な流路11で分岐されているが、樹脂Aと同様に細孔9を設け細孔で分岐することも可能である。

【0023】本発明における多層フィルムは、例えば、ポリエチレン-2、6-ナフタレートを主とするA層を

形成するポリマーとB層を形成するポリマーを図に例示したフィードブロックで積層し、積層状態を維持したままこれに続くダイに展開される。ダイより押出されたシートはキャストドラムで冷却固化され未延伸フィルムとなる。未延伸フィルムは所定の温度で、縦かつまたは横方向に延伸され所定の温度で熱処理され、必要によっては熱弛緩処理され、巻き取られる。

【0024】ところで、本発明の多層フィルムは少なくとも1方向に延伸され、好ましくは2軸延伸されているが、本発明ではA層側に高屈折率のポリマーを選定しているため、延伸温度はA層の樹脂のガラス転移点(T_g)から(T_g+50)°Cの範囲で行うことが好ましい。延伸倍率としては1軸延伸の場合、2~10倍で延伸方向は縦であっても横でも構わない。2軸延伸の場合は面積倍率として5~25倍である。延伸倍率が大いほど、A層およびB層の個々の層における面方向のばらつきが、延伸による薄膜化により絶対的に小さくなり、多層フィルムの光干渉が面方向に均一になるので好ましい。延伸方法としては、逐次2軸延伸、同時2軸延伸、チューブラー延伸、インフレーション延伸等の公知の延伸方法が可能であるが、好ましくは逐次2軸延伸が生産性、品質の面で有利である。

【0025】また、延伸されたフィルムは熱的な安定化のために、熱処理により安定化されるのが好ましい。熱処理の温度としては、(B層を構成する樹脂の融点-30)°Cより高く(A層を構成する樹脂の融点-30)°Cより低いのが好ましい。

【0026】更にまた本発明の多層ポリエステルフィルムはB層が両端層のどちらか一方にあるとA層を形成するポリマーのガラス転移点がB層を形成するポリマーのそれよりも通常高いので、延伸のためロール等で加熱する際にA層を延伸するのに必要な延伸温度に上げることができなかつたり、熱固定する際に表面のB層が融解するのを防ぐために温度が上げられず熱的な安定性が不十分となるなどの問題が発生する場合がある。これに対して、A層が両端層にあると熱的に不安定なB層が内層に位置するため十分な延伸温度や熱固定温度で生産できるので、本発明の多層フィルムはA層が両端層に位置するものが好ましい。尚、本発明で言う両端層とは多層フィルムの面方向に垂直な方向の最外層である。

【0027】また本発明の多層フィルムの製造過程、または製造後にフィルムの表面に機能性を持たせる等の目的で、塗液を塗布し乾燥する工程を設けても良い。

【0028】本発明においてA層を構成する樹脂Aとは、延伸可能なポリマーを主成分とする熱可塑性樹脂であり、例えばポリエチレンテレフタレート、ポリエチレン-2、6-ナフタレート、ポリブチレンテレフタレートのような芳香族ポリエステル、ポリエチレン、ポリプロピレンのようなポリオレフィン、ポリスチレンのようなポリビニル、ナイロン6(ポリカプロラクタム)、ナ

イロン66（ポリ（ヘキサメチレンジアミン-*c o o*-アジピン酸））のようなポリアミド、ビスフェノールAポリカーボネートのような芳香族ポリカーボネート、ポリスルホン等の単独重合体或いはこれらの共重合体を主成分とする樹脂を挙げることができる。

【0029】上記熱可塑性樹脂の中では、延伸による分子配向が可能な芳香族ポリエステル、ポリオレフィン、ポリアミドが好ましく、分子が二軸配向した際に光学的、機械的、熱的特性が優れたものになるポリエチレン-2、6-ナフタレートが特に好ましい。

【0030】本発明においてA層を構成する樹脂Aにポリエチレン-2、6-ナフタレートを主体とする樹脂を用いる場合、エチレン-2、6-ナフタレート単位を主とする共重合ポリエチレン-2、6-ナフタレート、或いはポリエチレン-2、6-ナフタレートを主とする組成物を使用することができる。ここで「主とする」とは共重合体または組成物におけるエチレン-2、6-ナフタレート単位の割合が全成分に対して85モル%以上を占めることを言う。共重合体を使用する場合、その共重合成分は15モル%以下、更に2モル%以下であることが好ましい。共重合成分は、ジカルボン酸成分であってもグリコール成分であっても良く、ジカルボン酸成分としては例えばイソフタル酸、フタル酸、ナフタレンジカルボン酸等の如き芳香族ジカルボン酸；アジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸、デカンジカルボン酸等の如き脂肪族ジカルボン酸；シクロヘキサンジカルボン酸等の如き脂環族ジカルボン酸等を挙げることができ、グリコール成分としては例えばブタンジオール、ヘキサジオール等の如き脂肪族ジオール；シクロヘキサンジメタノールの如き脂環族ジオール等を挙げることができる。

【0031】本発明における樹脂Bは、A層を構成する熱可塑性樹脂と屈折率が異なる熱可塑性樹脂であり、例えば樹脂Aよりも屈折率が0.005以上低い、より好ましくは0.02以上低い熱可塑性樹脂低い樹脂を挙げることができる。ここでいう屈折率とはシート状或いはフィルム状の樹脂の面内方向の屈折率である。

【0032】本発明においてA層を構成する樹脂Aにポリエチレン-2、6-ナフタレートをを用いる場合は、樹脂Bはポリエチレン-2、6-ナフタレートよりも屈折率が低い樹脂であることが好ましく、更に屈折率がポリエチレン-2、6-ナフタレートよりも0.005以上低い樹脂であることが好ましく、特に屈折率が0.02以上低い樹脂であることが好ましい。このような熱可塑性樹脂としては、以下の(1)～(3)の3種類を好ましく挙げることができる。

【0033】(1)ポリエチレン-2、6-ナフタレートとポリエチレンテレフタレートとの混合物

(2)シンジオタクティックポリスチレン

(3)融点が210℃～245℃のポリエチレンテレフタレート共重合体。

【0034】これらの中でも、B層がポリエチレン-2、6-ナフタレートとポリエチレンテレフタレートとの混合物またはシンジオタクティックポリスチレンからなるものが好ましく、特にB層の屈折率を容易に変更できることから、B層が上記混合物からなるものが好ましい。以下に本発明におけるB層を構成するポリマーが、(1)ポリエチレン-2、6-ナフタレートとポリエチレンテレフタレートとの混合物である場合について、詳細に説明する。

10 【0035】本発明におけるB層を構成するポリマーがポリエチレン-2、6-ナフタレートとポリエチレンテレフタレートとの混合物である場合は、両者の混合の割合は、重量比で5：95～95：5、特に20：80～80：20の範囲であることが好ましい。該混合割合において、ポリエチレンテレフタレートの割合が5重量%未満であるかポリエチレン-2、6-ナフタレートの割合が95重量%を超えるとA層との屈折率の差が不十分となり易く、他方、ポリエチレンテレフタレートの割合が95重量%を超えるかポリエチレン-2、6-ナフタレートの割合が5重量%未満だと、A層との溶融粘度の差が過度に大きくなり、多層の積層状態を維持するのが極めて困難になる。

【0036】ところで、B層の屈折率は、ポリエチレンテレフタレートとポリエチレン-2、6-ナフタレートとの混合割合を変更することで調整ができるので、反射率の調整のために数々のポリマーを準備する必要はない。換言すれば、混合物中の混合割合を調整するだけで容易に種々の反射率の多層積層延伸フィルムとすることができるといふ利点がある。また、B層のポリマーが共重合の場合、低結晶性になるので、溶融状態のポリマーを押出す際に特別な押出し機や乾燥機などの設備を必要とする場合がある。しかしながら、本発明では混合物であることから結晶性の低下が小さく、前述のような特別の設備を要しないという利点もある。

【0037】B層を構成する混合物中のポリエチレンテレフタレートとポリエチレン-2、6-ナフタレートについて、更に詳述する。

【0038】混合物中のポリエチレン-2、6-ナフタレートは、ポリエチレン-2、6-ナフタレートホモポリマー、または、全繰り返し単位の少なくとも80モル%、好ましくは90モル%以上がエチレン-2、6-ナフタレートで占められたコポリマーである。これらの中上記ホモポリマーが好ましい。上記コポリマーを構成する共重合成分としては、例えば、テレフタル酸、イソフタル酸、2、7-ナフタレンジカルボン酸のような他の芳香族カルボン酸；アジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸、デカンジカルボン酸等の如き脂肪族ジカルボン酸；シクロヘキサンジカルボン酸等の如き脂環族ジカルボン酸等の酸成分や、ブタンジオール、ヘキサジオール等の如き脂肪族ジオール；シクロヘキサンジメタノール

の如き脂環族ジオール等のグリコール成分を挙げることができる。

【0039】また、混合物中のポリエチレンテレフタレートは、ポリエチレンテレフタレートホモポリマー、または、全繰返し単位の少なくとも80モル%、好ましくは90モル%以上がエチレンテレフタレートで占められたコポリマーである。これらの中上記ホモポリマーが好ましい。上記コポリマーを構成する共重合成分としては、例えば、イソフタル酸、2,7-ナフタレンジカルボン酸のような他の芳香族カルボン酸；アジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸、デカンジカルボン酸等の如き脂肪族ジカルボン酸；シクロヘキサンジカルボン酸の如き脂肪族ジオール；シクロヘキサジメタノールの如き脂環族ジオール等のグリコール成分を挙げることができる。これらのコポリマーの中では、イソフタル酸のコポリマーが好ましい。

【0040】ところで、B層を構成する混合物の融点は、元々のポリマーの融点よりは低くなるものの、それぞれのポリマーに由来する2つのピークを形成する。これらB層を構成する混合物の融点ピークの内、高い方のピーク温度は、220℃～265℃、更に240～260℃の範囲にあるものが好ましい。また、A層を構成するポリマーの融点とB層を構成する混合物の高い方の融点ピークとの温度差は、少なくとも10℃更に少なくとも20℃であることが好ましい。この融点差が少なくとも10℃あると、熱処理による配向の差が拡大し易く、屈折率の差がつけやすい。

【0041】本発明において、延伸されたフィルムは、熱的な安定化のために、熱処理（熱固定処理）をするのが好ましく、B層を構成するポリマーとして、ポリエチレン-2,6-ナフタレートとポリエチレンテレフタレートとの混合物を用いた場合は、A層のポリマーの融点（ T_{mA} ）を基準としたとき、（ $T_{mA}-60$ ）℃～（ $T_{mA}-10$ ）℃の範囲の温度で熱処理するのが好ましい。

【0042】本発明において、A層またはB層を構成するポリマーの少なくとも一方は、フィルムの巻き取り性を向上させるため、平均粒径が好ましくは0.01～2μm、より好ましくは0.05～1μm、最も好ましくは0.1～0.3μmの範囲にある不活性粒子を好ましくは0.001～0.5重量%、より好ましくは0.005～0.2重量%の割合で含有する。不活性粒子の平均粒径が0.01μm未満または含有量が0.001重量%未満ではフィルムの巻き取り性向上が不十分になりやすく、他方、不活性粒子の平均粒径が2μmを超えるまたは含有量が0.5重量%を超えると粒子による光学特性の悪化が顕著になりやすく、フィルム全体の光線透過率が減少する場合がある。尚、光線透過率は70%以上が好ましく、これより低いと光学用途には性能不足となる。

【0043】このような不活性粒子としては例えばシリカ、アルミナ、炭酸カルシウム、磷酸カルシウム、カオリン、タルクのような無機不活性粒子、シリコン、架橋ポリスチレン、スチレン-ジビニルベンゼン共重合体のような有機不活性粒子をあげることができる。

【0044】

【実施例】以下、実施例によって本発明を更に説明する。尚、例中の物性は下記の方法で測定した。

【0045】（1）各層の厚み

- 10 サンプルを三角形に切り出し、包埋カプセルに固定後、エポキシ樹脂にて包埋する。そして、包埋されたサンプルをマイクローム（ULTRACUT-S）で縦方向に平行な断面を50nm厚みの薄膜切片にしたあと、透過型電子顕微鏡を用いて、加速電子100kvにて観察・投影し、写真から各層の厚みを測定し、A層およびB層の厚みを測定した。

【0046】（2）反射率

- 20 島津製作所製分光光度計MPC-3100を用い、各波長でのアルミ蒸着したミラーとの相対鏡面反射率を波長350～2100nmの範囲で測定する。その測定された反射率の中で最大のものを、最大反射率とする。

【0047】（3）ピーク反値幅波長

最大反射率と同様の測定を行い、最大反射率の半値幅となる波長の短波長側と長波長側の値をそれぞれ短波長側、長波長側ピーク半値幅波長とした。

【0048】（4）屈折率

- 30 ナトリウムD線（589nm）を光源とし、マウント液にはヨウ化メチレンを用いて、偏光板を装着したアップ屈折計にて、25℃、65%RHの条件でサンプルの長手方向の屈折率（ n_{MD} ）と、サンプルの巾方向の屈折率（ n_{TD} ）を測定し、 n_{MD} と n_{TD} の平均値を面内方向の屈折率（ n_{Ave} ）とした。ただし、本発明の延伸フィルムでは樹脂Aと樹脂Bに該当する2本の線が見えるので、高屈折率側をA樹脂、低屈折率側をB樹脂の屈折率とした。

【0049】尚、サンプルの作成は以下のとおりとした。

- 40 【0050】（樹脂Aの未延伸シートの屈折率）各実施例で用いたA層用押出機とB層用押出機の両方に樹脂A供給して熔融し、熔融した樹脂Aを各実施例で用いた多層フィードブロックに導入し、多層フィードブロック内でポリマーを多層に分岐させた後、多層フィードブロック内の合流部でA層同士を交互に積層させ、さらにその積層熔融樹脂の外層にA樹脂を合流させダイへと導き、キャストドラム上にキャストしてA層同士が積層された未延伸シートを作成した。このシートの面内方向の屈折率を測定して樹脂Aの未延伸シートの屈折率とした。

- 50 【0051】（樹脂Bの未延伸シート、延伸シートの屈折率）各実施例で用いたA層用押出機とB層用押出機の

両方に樹脂B供給した以外は、上記樹脂Aの屈折率測定と同様にして、樹脂Bの未延伸シートの屈折率を測定した。

【0052】(延伸フィルムの屈折率)各実施例で得られた延伸フィルムの面内方向屈折率を測定した。

【0053】(5) ガラス転移温度(T_g)

試料10mgをDSC装置(デュボン社製 Thermal Analyst 2000型 示差熱量計)にセットし、300℃の温度で5分間熔融した後、液体窒素中で急冷する。この急冷試料を10℃/分で昇温させ、ガラス転移点T_gを測定する。

【0054】(6) 融点(T_m)

試料10mgをDSC装置(デュボン社製 Thermal Analyst 2000型 示差熱量計)にセットし、300℃の温度で5分間熔融した後、液体窒素中で急冷する。この急冷試料を10℃/分で昇温させ、融点ピーク温度を測定した。

【0055】[実施例1] まず図1~4に示す装置で、A層の細孔9としては、個数が100個、幅が0.70mm、深さが17mm、扁平な流路11の個数が100個、深さが17mmとし、B層の扁平な流路11の個数が101個、幅が0.70mm、深さが17mm、のSUS630製の多層フィードブロックにアルミ製のインナーディッケル12を挿入し、薄膜部のA層を30層、B層を31層とした。また、厚膜部はA層が両端側に各1層づつになるようにした。

【0056】また、樹脂Aには固有粘度(オルトクロロフェノール、35℃)0.62dl/gのポリエチレン-2,6-ナフタレート(PEN)、樹脂Bには固有粘度(オルトクロロフェノール、35℃)0.63dl/gのポリエチレンテレフタレート(PET)を準備した。そして、PENに真球状シリカ粒子(平均粒径:0.12μm、長径と短径の比:1.02、粒径の平均偏差:0.1)を0.11wt%添加したものをA層用の樹脂とし、不活性粒子を含まないPENとPETを50:50の重量比で混合したものをB層用の樹脂として調整した。

【0057】A層用の樹脂を160℃で3時間、B層用の混合樹脂を160℃で3時間乾燥後、A層用押出機とB層用押出機に夫々供給して熔融し、熔融した樹脂Aと樹脂Bを多層フィードブロック内に導き、多層フィードブロック内でA層のポリマーをまず厚膜部と薄膜部に向かう2つに分岐し、厚膜部に向かうA層樹脂をさらに両端層に向かう2つに分岐し、残る薄膜部に向かうA層樹脂を細孔9で30層に分岐し、一方B層のポリマーを扁平な流路11で31層に分岐させた後、多層フィードブロック内の合流部で薄膜部のA層とB層を交互に積層させ、その61層の積層状態を維持したまま、両端部へ向かうA層樹脂をピン2で流量を調整しながら再合流させダイへと導き、キャストリングドラム上にキャストして

A層とB層が積層された総数63層の積層未延伸シートを作成した。

【0058】この未延伸積層シートを150℃の温度で縦方向に3.2倍に延伸し、更に155℃の延伸温度で横方向に3.5倍に延伸し、230℃で3秒間の熱固定処理を行った。得られた多層フィルムの物性を表1に示す。尚、別途測定した樹脂Aの屈折率は、未延伸シートでは1.647、延伸フィルムでは1.770であり、樹脂B(樹脂H)の屈折率は、未延伸シートでは1.612、延伸フィルムでは1.651であった。

【0059】[実施例2~5] フィードブロック、層数、樹脂の組み合わせを表1に示すとおり変更した以外は実施例と同様に多層フィルムを製造し、それぞれ、紫外線およびRGB光を選択的に反射する特性を得た。得られたフィルムの物性測定結果を表1に示す。

【0060】[実施例6] フィードブロックの巾方向に温度分布を付与した以外は実施例5と同様に多層フィルムを製造し、近赤外線の波長範囲内をカットできる特性を得た。得られたフィルムの物性測定結果を表1に示す。

【0061】

【表1】

	フィード ブロック	A層						B層						反射波長幅			
		厚膜層			薄膜層			樹脂	厚膜層		薄膜層		総厚み μm	ピーク半値幅波長		最大 反射率 %	
		層数	層厚み μm	層数	層厚み μm	層数	層厚み μm		短波長側 nm	長波長側 nm							
実施例 1	図 1	2	23	F	30	0.06	1.83	H	0	-	31	0.06	1.89	50	415	430	46
実施例 2	図 6	1	4	F	30	0.06	1.83	H	1	42	31	0.06	1.89	50	412	430	44
実施例 3	図 1	2	5	G	100	0.07	6.9	I	0	-	101	0.07	7.0	25	460	470	48
実施例 4	図 1	2	4	G	100	0.08	7.8	I	0	-	101	0.08	7.9	25	510	520	52
実施例 5	図 1	2	2	G	100	0.11	10.5	I	0	-	101	0.12	10.6	25	690	700	54
実施例 6	図 1	2	25	F	100	0.08~ 0.13	12.4	I	0	-	101	0.07~ 0.14	12.7	75	850	940	78

【0062】尚、表1に示すA層、B層の樹脂は以下の通りである。

【0063】樹脂F：PENに真球状シリカ粒子（平均粒径：0.12μm、長径と短径の比：1.02、粒径の平均偏差：0.1）を0.11wt%添加したもの。

【0064】樹脂G：真球状シリカ粒子（平均粒径：0.12μm、長径と短径の比：1.02、粒径の平均偏差：0.1）を0.11wt%添加したPENと、不活性粒子を含まないPETを70：30の重量比で混合したもの。この樹脂の屈折率は、未延伸シートでは1.664、延伸フィルムでは1.710であった。

【0065】樹脂H：不活性粒子を含まないPENとPETを50：50の重量比で混合したもの。

【0066】樹脂I：不活性粒子を含まないイソフタル酸を12mol%共重合したPET共重合体。この樹脂の屈折率は、未延伸シートでは1.590、延伸フィルムでは1.630であった。

【0067】

【発明の効果】本発明によれば、光学的特性を維持しつつ、多層フィルムの厚みをハンドリング性の良い厚みに制御でき、かつ効率良く多層フィルムを生産できる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の一つの実施形態を示す多層フィードブロックの平面図である。

【図2】本発明の一つの実施形態を示す多層フィードブロックの側面図である。

【図3】図2のC部のうちA層用熔融樹脂Aを細孔で分岐する部分の斜視図である。

【図4】図2のC部のうち、樹脂Bを分岐してA層とB層を交互に重ねる扁平な流路を示した斜視図である。

【図5】本発明の一つの実施形態において、多層フィードブロック、押出ダイ、冷却ドラム等の配置を示す斜視図である。

【図6】本発明の一つの実施形態を示す多層フィードブロックの平面図である。

【図7】多層積層フィルムの薄膜部と厚膜部を示す図である。

【図8】本発明の一つの実施形態において、ディストリビューションピンの形状を示す断面図である。

【符号の説明】

1：多層フィードブロック

2：ディストリビューションピン

3：マニホールド

4：合流後マニホールド

5：矩形断面導管

6：最表層のA層樹脂導管

7：薄膜部のA層樹脂導管

8：B層樹脂導管

9：細孔部

10：平行板

11：平行板で仕切られた扁平な流路

12：インナーディッケル

21：多層フィードブロックへの熔融樹脂Aの導管

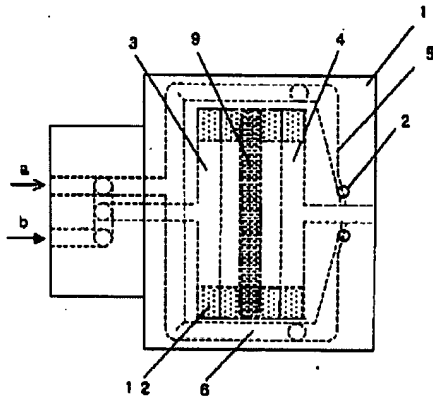
22：多層フィードブロックへの熔融樹脂Bの導管

23：押出ダイ

17

- 24 : ダイより押出されたシート
 25 : キャスティングドラム
 26 : 未延伸フィルム

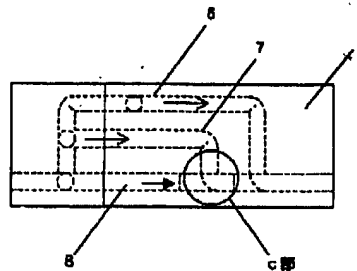
【図1】



18

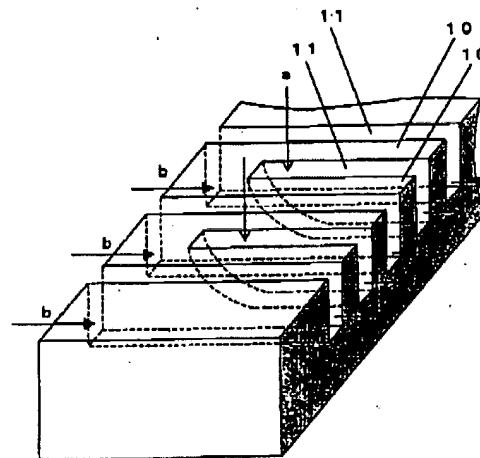
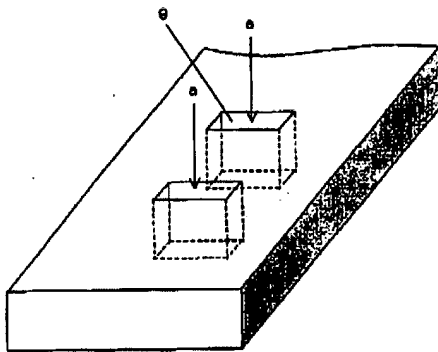
- * a : A層を構成する溶融樹脂Aの流れ方向
 b : B層を構成する溶融樹脂Bの流れ方向
 * c部 : 【図4】の斜視図で示した部分

【図2】

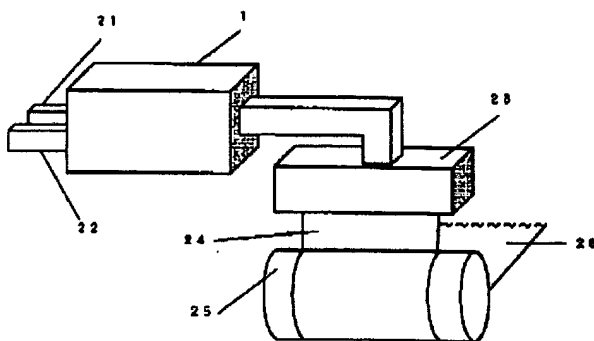


【図4】

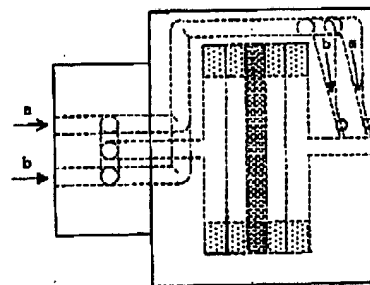
【図3】



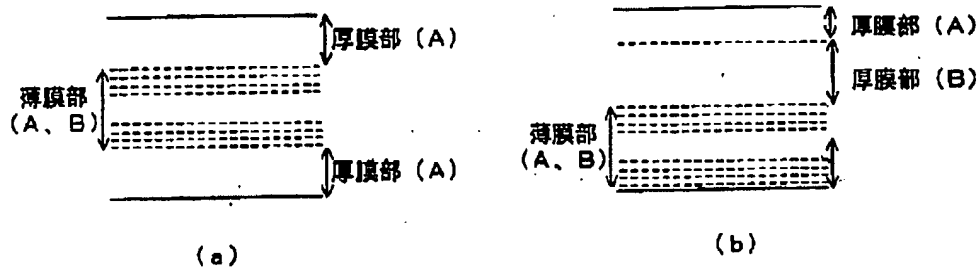
【図5】



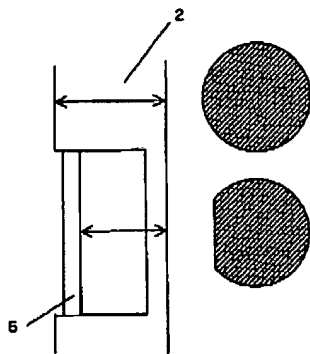
【図6】



【図7】



【図8】



フロントページの続き

F ターム(参考) 4F100 AK01A AK01B AK01C AK01D
 AK01E AK41A AK41B AK41C
 AK41D AK41E AK42B AK42D
 AK42E AL01B AL01D AL01E
 AL05B AL05D AL05E BA15
 BA25 EH03 GB90 JA04B
 JA04D JA04E JN06 JN08
 JN18A JN18B JN18C JN18D
 JN18E YY00B YY00D YY00E
 4F207 AA24 AG01 AG03 AR06 KA01
 KA17 KB26 KL83 KW41
 4F210 AA24 AG01 AG03 QC06 QG01
 QG15 QG18